

Family list

13 family members for: JP3231970

Derived from 8 applications

[Back to Jf](#)

- 1 Organic electroluminescent device containing aromatic dimethyldiyne compounds.**
Inventor: TOKAILIN HIROSHI C O IDEMITSU (JP); HIGASHI HISAHIRO C O IDEMITSU (JP); (+1)
EC: H05B33/14; C07C15/52; (+4)
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO (JP)
IPC: C07C15/52; C09K11/06; H01L51/30 (+12)
Publication info: DE69021416D D1 - 1995-09-14
- 2 Organic electroluminescent device containing aromatic dimethyldiyne compounds.**
Inventor: TOKAILIN HIROSHI C O IDEMITSU (JP); HIGASHI HISAHIRO C O IDEMITSU (JP); (+1)
EC: H05B33/14; C07C15/52; (+4)
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO (JP)
IPC: C07C15/52; C09K11/06; H01L51/30 (+12)
Publication info: DE69021416T T2 - 1996-02-15
- 3 Organic electroluminescent device containing aromatic dimethyldiyne compounds.**
Inventor: TOKAILIN HIROSHI C O IDEMITSU (JP); HIGASHI HISAHIRO C O IDEMITSU (JP); (+1)
EC: H05B33/14; C07C15/52; (+4)
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO (JP)
IPC: C07C15/52; C09K11/06; H01L51/30 (+12)
Publication info: EP0388768 A2 - 1990-09-26
EP0388768 A3 - 1991-11-06
EP0388768 B1 - 1995-08-09
- 4 Aromatic dimethyldiyne compounds and process for preparation thereof.**
Inventor: TOKAILIN HIROSHI C O IDEMITSU (JP); HIGASHI HISAHIRO C O IDEMITSU (JP); (+1)
EC: H01L51/00M6D; C07C13/28; (+8)
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO (JP)
IPC: C07C13/28; C07C15/52; C07C15/58 (+17)
Publication info: EP0616020 A1 - 1994-09-21
- 5 ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT**
Inventor: SHOJI HIROSHI; HOSOKAWA TADASHIO; (+1)
EC:
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO
IPC: H05B33/12; C09K11/06; H01L51/50 (+7)
Publication info: JP2091626C C - 1996-09-18
JP2247278 A - 1990-10-03
JP7119407B B - 1995-12-20
- 6 AROMATIC DIMETHYLIDENE COMPOUND AND PRODUCTION THEREOF**
Inventor: AZUMA HISAHIRO; SHOJI HIROSHI; (+1)
EC:
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO
IPC: C09B23/00; C09K11/06; C09B23/00 (+5)
Publication info: JP2554771B2 B2 - 1996-11-13
JP3231970 A - 1991-10-15
- 7 ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE DEVICE**
Inventor: TOKAILIN HIROSHI (JP); HIGASHI HISAHIRO (JP); (+1)
EC: H05B33/14; C07C15/52; (+4)
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO (JP)
IPC: C07C15/52; C09K11/06; H01L51/30 (+11)
Publication info: US5130603 A - 1992-07-14
- 8 Aromatic dimethyldiyne compounds**
Inventor: TOKAILIN HIROSHI (JP); HIGASHI HISAHIRO (JP); (+1)
EC: H01L51/00M6D; C07C15/52; (+3)
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO (JP)
IPC: C07C15/52; C09K11/06; H01L51/30 (+8)
Publication info: US6093864 A - 2000-07-25

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

⑫ 公開特許公報(A)

平3-231970

⑮ Int. Cl.⁵

C 09 B 23/00

識別記号

庁内整理番号

⑯ 公開 平成3年(1991)10月15日

C 09 K 11/06

E
J
L
H
Z7537-4H
7537-4H
7537-4H
7537-4H
7043-4H

審査請求 未請求 請求項の数 5 (全 38 頁)

⑰ 発明の名称 芳香族ジメチリデン化合物及びその製造方法

⑱ 特 願 平2-242669

⑲ 出 願 平2(1990)9月14日

優先権主張 ⑳ 平1(1989)12月28日㉑ 日本(JP)㉒ 特願 平1-338134

㉓ 発 明 者 東 久 洋 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内
 ㉔ 発 明 者 東 海 林 弘 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内
 ㉕ 発 明 者 細 川 地 潮 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内
 ㉖ 出 願 人 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
 ㉗ 代 理 人 弁理士 大 谷 保

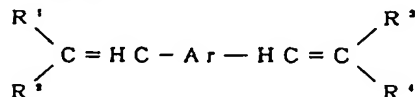
明 細 書

1. 発明の名称

芳香族ジメチリデン化合物及びその製造方法

2. 特許請求の範囲

(1) 一般式



[式中、R¹～R⁴は炭素数1～6のアルキル基、炭素数7～8のアラルキル基、置換あるいは無置換の炭素数6～18のアリール基、置換あるいは無置換の芳香族複素環基、置換あるいは無置換のシクロヘキシル基、置換あるいは無置換の炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアルコキシ基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンを示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。またR¹～R⁴は同一でも、また互

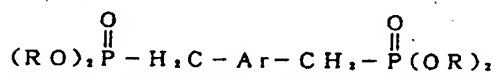
いに異なってもよく、R¹とR²、R³とR⁴は置換している基と結合して、置換あるいは無置換の飽和五員環又は置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。

Arは置換あるいは無置換の炭素数6～20のアリール基を表わし、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお置換基は前記と同じである。また、アリール基の置換基同士が結合して、置換あるいは無置換の飽和五員環又は置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R¹～R⁴は、それぞれ炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～8のアラルキル基、置換あるいは無置換のナフチル基、置換あるいは無置換のビフェニル基、置換あるいは無置換のシクロヘキシル基、置換あるいは無置換のピリジル基、置換あるいは無置換のアリールオキシ基より選ばれたものである。]

で表わされる芳香族ジメチリデン化合物。

(2) $R^1 \sim R^4$ がそれぞれ炭素数1~6のアルキル基、置換あるいは無置換のフェニル基、置換あるいは無置換のナフチル基、置換あるいは無置換のビフェニル基、置換あるいは無置換のアリールオキシ基、置換あるいは無置換のシクロヘキシル基、置換あるいは無置換のピリジル基を示し、 Ar が置換フェニレン基、置換あるいは無置換のナフチレン基、置換あるいは無置換のp-テルフェニレン基、置換あるいは無置換のアントラセンジイル基を示す(ただし、置換基は、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、フェニル基、ニトロ基、ハロゲンを示し、単一でも複数でもよい。)である請求項1の芳香族ジメチリデン化合物。

(3) 一般式

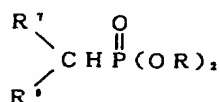


(式中、 R は炭素数1~4のアルキル基あるいはフェニル基を示し、 Ar は前記と同じである。)

で表わされるアリーレン基含有リン化合物を、

- 3 -

(4) 一般式



(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ前記 $R^1 \sim R^4$ と同じである。)

で表わされるリン化合物を、

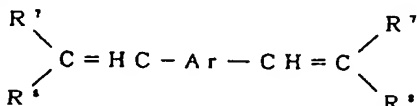
一般式



(式中、 Ar は前記と同じである。)

で表わされるジアルデヒドと縮合させることを特徴とする

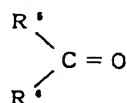
一般式



(式中、 Ar は前記と同じである。 R^1 、 R^2 は、それぞれ前記 $R^1 \sim R^4$ と同じである。)

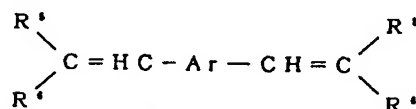
で表わされる芳香族ジメチリデン化合物の製造

一般式



(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ前記 $R^1 \sim R^4$ と同じである。但し、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基である場合は除く。)

で表わされるケトンと縮合させることを特徴とする一般式



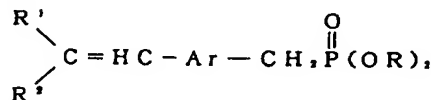
(式中、 Ar は前記と同じである。 R^1 、 R^2 は、それぞれ前記 $R^1 \sim R^4$ と同じである。但し、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基である場合は除く。)

で表わされる芳香族ジメチリデン化合物の製造方法。

- 4 -

方法。

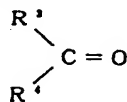
(5) 一般式



(式中、 R^1 及び R^2 、 Ar 、 R は前記と同じである。)

で表わされるアリーレン基含有リン化合物を

一般式



(式中、 R^1 及び R^2 は前記と同じである。)

で表わされるケトンと縮合させることを特徴とする請求項1又は請求項2記載の芳香族ジメチリデン化合物の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は芳香族ジメチリデン化合物及びその製造方法に関し、詳しくはエレクトロルミネッセ

ンス(EL)素子の発光材料などに有用な新規な芳香族ジメチリデン化合物及びその効率のよい製造方法に関する。

(従来の技術及び発明が解決しようとする課題)

有機化合物の高い蛍光効率に着目し、有機化合物のEL性能を利用した素子の研究は古くから行われている。例えば、W. Helfrich, Dresmer, Williamsらはアントラセン結晶を用い、青色発光を得ている(J.Chem. Phys., 44, 2902 (1966))。また、Vincett やBarlowらは、縮合多環芳香族化合物を真空蒸着法により発光素子の製作を行っている(Thin Solid Films, 99, 171(1982))。

しかしいずれも発光輝度、発光効率は低いものしか得られていない。

最近、テトラフェニルブタジエンを発光材料に用いて1000 cd/m²の青色発光を得たことが報告されている(特開昭59-194393号公報)。さらに、正孔伝導性のジアミン化合物と発光材料としての蛍光性アルミニウムキレート錯体を積層することにより、輝度1000 cd/m²以上の緑色

発光有機薄膜EL素子を開発したことが報告されている(Appl. Phys. Lett., 51, 913(1987))。

また、レーザー色素として有名なジスチリルベンゼン系化合物は、青～青緑の領域で高い蛍光性を有し、これを発光材料として単層で80 cd/m²程度のEL発光を得られたことが報告されている(欧州特許0319881)。

しかしながら、輝度1000 cd/m²以上の高輝度で高効率な発光材料は、緑色以外(特に青色系統)ではまだ得られていないのが現状である。

また、ジスチリル化合物を含有することを特徴とする感光体について、特開昭63-269158号公報に示されているが、ここに示される化合物は、中心部位が無置換のフェニル基であり、これを発光材料としてEL素子を作成すると、結晶化が進行し、薄膜性が劣ることが明らかである。

そこで本発明者らは、青紫～緑にわたる領域(特に青色)で輝度1000 cd/m²以上の高輝度のEL発光が得られる化合物を開発すべく鋭意研究を重ねた。

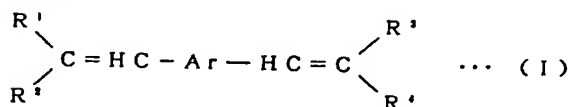
- 7 -

(課題を解決するための手段)

その結果、特定の置換基を有する新規な芳香族ジメチリデン化合物が、上記目的にかなうものであることを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち本発明は、

一般式



(式中、R'～R''は炭素数1～6のアルキル基、炭素数7～8のアラルキル基、置換あるいは無置換の炭素数6～18のアリール基、置換あるいは無置換の芳香族複素環基、置換あるいは無置換のシクロヘキシル基、置換あるいは無置換の炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアルコキシ基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいは

- 8 -

ハロゲンを示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。またR'～R''は同一でも、また互いに異なってもよく、R'とR'', R''とR'は置換している基と結合して、置換あるいは無置換の飽和五員環又は置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。

Arは置換あるいは無置換の炭素数6～20のアリール基を表わし、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお置換基は前記と同じである。また、アリール基の置換基同士が結合して、置換あるいは無置換の飽和五員環又は置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R'～R''は、それぞれ炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～8のアラルキル基、置換あるいは無置換のナフチル基、置換あるいは無置換のビフェニル基、置換あるいは無置換のシクロヘキシル基、置換あるいは無置換のピリジル基、置換あるいは無置換のアリー

ルオキシ基より選ばれたものである。) で表わされる芳香族ジメチリデン化合物を提供するものである。また、本発明は、
一般式

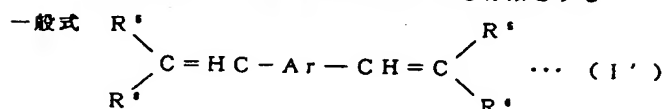


(式中、Rは炭素数1~4のアルキル基あるいはフェニル基を示し、Arは前記と同じである。) で表わされるアリーレン基含有リン化合物を、
一般式



(式中、R'及びR'は、それぞれ前記R'~R'と同じである。但し、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基である場合は除く。)

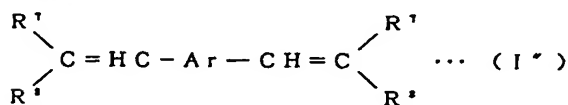
で表わされるケトンと縮合させることを特徴とする



- 1 1 -

微とする

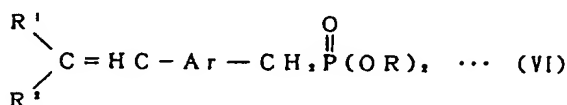
一般式



(式中、Arは前記と同じである。R', R'は、それぞれ前記R'~R'と同じである。)

で表わされる芳香族ジメチリデン化合物の製造方法(以下、方法Bという)を提供するものである。更に、本発明は、

一般式



(式中、R'及びR', Ar, Rは前記と同じである。)

で表わされるアリーレン基含有リン化合物を

一般式

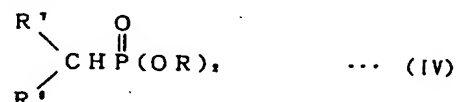


- 1 3 -

(式中、Arは前記と同じである。R', R'は、それぞれ前記R'~R'と同じである。但し、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基である場合は除く。)

で表わされる芳香族ジメチリデン化合物の製造方法(以下、方法Aという)を提供し、さらに

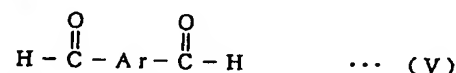
一般式



(式中、R'及びR'は、それぞれ前記R'~R'と同じである。)

で表わされるリン化合物を、

一般式



(式中、Arは前記と同じである。)

で表わされるジアルデヒドと縮合させることを特

- 1 2 -

(式中、R'及びR'は前記と同じである。)

で表わされるケトンと縮合させることにより、上記一般式(I)で表わされる芳香族ジメチリデン化合物を製造する方法(以下、方法Cという)を提供するものである。

ここで、一般式(I)中のR'~R'は、前述の如く同一でも異なってもよく、それぞれ炭素数1~6のアルキル基(メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基)、炭素数7~8のアラルキル基(ベンジル基、フェネチル基等)、フェニル基、アルコキシ基、シクロヘキシル基、ビフェニル基、ナフチル基又は複素環式基(ピリジル基、カルバゾリル基、キノリル基等)を示す。また、R'~R'は、これらに置換基の結合したものでよい。即ち、さらにR'~R'は、それぞれ置換基含有フェニル基、置換基含有アラルキル基、置換基含有シクロヘキシル基、置換基含有ビフェニル基、置

- 1 4 -

換基含有ナフチル基あるいは置換基含有複素環式基を示す。ここで、置換基はアルキル基、アルコキシ基又はアリールオキシ基、フェニル基及びニトロ基、水酸基、ハロゲンであり、複数置換されていてもよい。したがって、置換基含有アラルキル基は、アルキル基置換アラルキル基（メチルベンジル基、メチルフェネチル基等）、アルコキシ基置換アラルキル基（メトキシベンジル基、エトキシフェネチル基等）、アリールオキシ基置換アラルキル基（フェノキシベンジル基、ナフチルオキシフェネチル基等）、フェニル基置換アラルキル基（フェニルフェネチル基等）上記置換基含有フェニル基は、アルキル基置換フェニル基（トリル基、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基など）、アルコキシ基置換フェニル基（メトキシフェニル基、エトキシフェニル基など）アリールオキシ基置換フェニル基（フェノキシフェニル基、ナフチルオキシフェニル基等）あるいはフェニル基置換フェニル基（つまり、ビフェニル基）である。また、置換基含有シクロヘキシル基は、ア

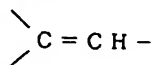
ルキル基置換シクロヘキシル基（メチルシクロヘキシル基、ジメチルシクロヘキシル基、エチルシクロヘキシル基等）、アルコキシ基置換シクロヘキシル基（メトキシシクロヘキシル基、エトキシシクロヘキシル基等）あるいはアリールオキシ基置換シクロヘキシル基（フェノキシシクロヘキシル基、ナフチルオキシシクロヘキシル基）、フェニル基置換シクロヘキシル基（フェニルシクロヘキシル基）である。置換基含有ナフチル基は、アルキル基置換ナフチル基（メチルナフチル基、ジメチルナフチル基等）、アルコキシ基置換ナフチル基（メトキシナフチル基、エトキシナフチル基等）あるいはアリールオキシ基置換ナフチル基（フェノキシナフチル基、ナフチルオキシナフチル基）、フェニル基置換ナフチル基である。さらに、置換基含有複素環式基の例として例えば、置換基含有ピリジル基は、アルキル基置換ピリジル基（メチルピリジル基、ジメチルピリジル基、エチルピリジル基等）、アルコキシ基置換ピリジル基（メトキシピリジル基、エトキシピリジル基等）

- 15 -

あるいはアリールオキシ基置換ピリジル基（フェノキシピリジル基、ナフチルオキシピリジル基）、フェニル基置換ピリジル基である。

$R^1 \sim R^4$ としては、上述したもののうち、それぞれ炭素数1～6のアルキル基、アリールオキシ基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ピリジル基、シクロヘキシル基が好ましい。これらは置換・無置換のいずれでもよい。

一方、一般式(I)中のArは置換あるいは無置換のフェニレン基、ビフェニレン基、p-テルフェニレン、ナフチレン基、アントラセンジイル基等のアリーレン基であり、単一置換されていても複数置換されていてもよい。又、メチリディン

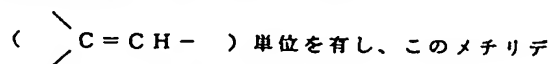


の結合位置はオルト、メタ、パラ等どこでもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、 $R^1 \sim R^4$ は炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～8のアラルキル基、置換あるいは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、ピリジル基、

- 16 -

アリールオキシ基より選ばれたものである。置換基はアルキル基（メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等）、アルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、i-プロポキシ基、ブチルオキシ基、i-ブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、t-ブチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、t-ペンチルオキシ基）、アリールオキシ基（フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）フェニル基、水酸基、ニトロ基、ハロゲンであり、単一置換でも複数置換されていてもよい。

前記式(I)で表わされるジメチリディン芳香族化合物は、1分子中に2つのメチリディン



単位を有し、このメチリディン単位の幾何異性によって、4通りの組合わせすなわち、シス-シス、トランス-シス、シス-トランス及びトランス-トランスの組合わせがあ

るが、本発明のジメチリディン芳香族化合物は、それらのいずれのものであってもよいし、幾何異性体の混合したものでもよい。特に好ましくは、全てトランス体のものである。

上述した本発明の新規な芳香族ジメチリディン化合物は、各種の方法で製造することができるが、本発明の方法A、BあるいはCによれば、効率よく製造することができる。

まず、本発明の方法Aでは、前述の一般式(II)で表わされるアリーレン基含有リン化合物と一般式(III)で表わされるケトンとを、縮合反応させることによって、目的とする一般式(I')の芳香族ジメチリディン化合物を製造する。ここで一般式(II)中のArは、製造すべき芳香族ジメチリディン化合物のArに対応する。また、Rは炭素数1~4のアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基)及びフェニル基である。このアリーレン基含有リン化合物は、公知の方法、例えばArbsov反応;つまり



- 19 -

ン;ビス(2-メトキシエチル)エーテル;シオキサン;テトラヒドロフラン;トルエン;キシレン;ジメチルスルホキシド;N,N-ジメチルホルムアミド;N-メチルピロリドン;1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノンなどが挙げられる。中でもテトラヒドロフラン、ジメチルスルホキシドが好適である。

また、縮合剤としては苛性ソーダ、苛性カリ、ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、n-ブチルリチウム、ナトリウムメチラート及びカリウム-t-ブトキシド等のアルコラートが、必要に応じて用いられる。中でもn-ブチルリチウム、カリウム-t-ブトキシドが好適である。

反応温度は、用いる反応原料の種類や他の条件により異なり、一義的に定めることはできないが、通常は約0℃~約100℃まで広範囲に選択することができる。特に好ましくは10℃~70℃の範囲である。

本発明の芳香族ジメチリディン化合物は、上記方法Aで効率よく製造することができるが、また

(式中、Xはハロゲン原子を示し、Arは前記と同じである。)

で表わされる芳香族ビスハロメチル化合物と、



(式中Rは前記と同じである。)

で表わされる亜リン酸トリアルキルを反応させることにより得ることができる。

また、一般式(III)のケトンにおいて、R⁵、R⁶は、製造すべき芳香族ジメチリディン化合物のR⁵、R⁶に対応して選定される。なお、ここでR⁵、R⁶は前記R¹~R⁴と同様である(但し、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基を除く)。

この一般式(II)のアリーレン基含有リン化合物と一般式(III)のケトンとの縮合反応は、様々な条件で進行させることができる。ここで用いる反応溶媒としては、炭化水素、アルコール類、エーテル類が良好である。具体的には、メタノール;エタノール;イソプロパノール;ブタノール;2-メトキシエタノール;1,2-ジメトキシエタ

- 20 -

この芳香族ジメチリディン化合物のうち、特定のものは、方法Bによっても効率よく製造することができる。

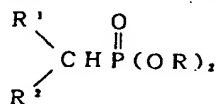
この方法Bでは、一般式(IV)で表わされるリン化合物と一般式(V)で表わされるジアルデヒドとを、縮合反応させることによって、目的とする一般式(I')の芳香族ジメチリディン化合物を製造する。ここで一般式(IV)中のRは炭素数1~4のアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基)及びフェニル基であり、R⁷、R⁸は製造すべき芳香族ジメチリディン化合物のR⁷、R⁸に対応する。また、一般式(V)中のArは、製造すべき芳香族ジメチリディン化合物のArに対応する。

この一般式(IV)のリン化合物と一般式(V)のジアルデヒドとの縮合反応は、様々な条件で進行させることができる。ここで好適に用られる反応溶媒や縮合剤は、前記方法Aで用いるものと同様である。また、反応温度は、用いる反応原料の種類や他の条件により異なり、一義的に定めるこ

とはできないが、通常は約0℃～約100℃まで広範囲に選択することができる。特に好ましくは0℃～70℃である。

本発明の芳香族ジメチリディン化合物は、上述の方法A及びBにより効率よく製造することができる。また、さらに方法Cによっても製造できる。

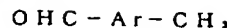
この方法Cでは、一般式(VI)で表わされるリン化合物と一般式(VII)で表わされるケトンとを縮合反応させることによって、目的とする一般式(I)の芳香族ジメチリディン化合物を製造する。ここで一般式(VI)中のRは炭素数1～4のアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基)及びフェニル基であり、R¹、R²は製造すべき芳香族ジメチリディン化合物のR¹、R²に対応して選定される。ここで、一般式(VI)の製造法としては、一般式



(R¹、R²、Rは、前記と同である。)

で表わされるリン化合物を

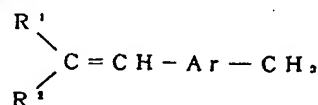
一般式



(式中、Arは前記と同である。)

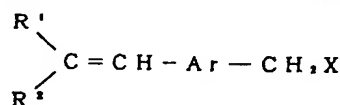
で表わされるアルデヒドを縮合させることにより

一般式



(式中、R¹、R²、Arは前記と同である。)

で表わされる芳香族メチリディン化合物が得られる。これを公知の方法、例えばN-ハロアミド、特にN-クロロ及びN-プロモ-コハク酸アミドによるハロゲン化反応により一般式



(式中、Xはハロゲン原子を示し、Ar、R¹、R²は前記と同じである。)

で表わされる芳香族ハロメチル化合物が得られる。

- 2 3 -

このハロメチル化合物と、

一般式 (RO)₃P

(式中、Rは前記と同である。)

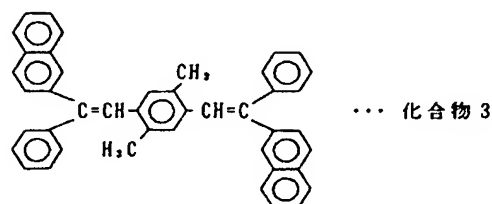
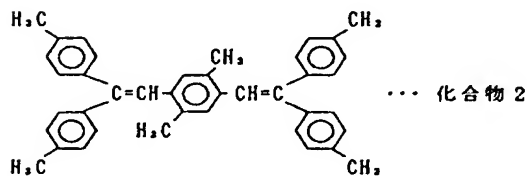
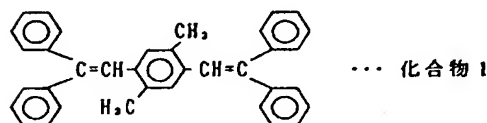
で表わされる亜リン酸トリアルキルを反応させることにより得ることができる。

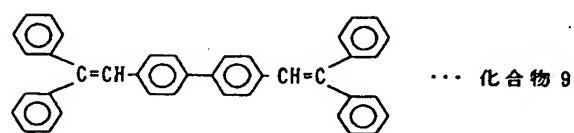
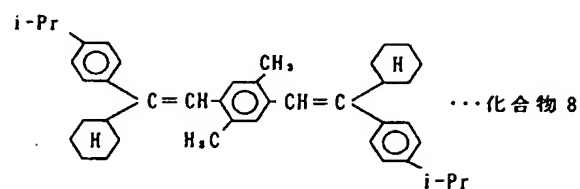
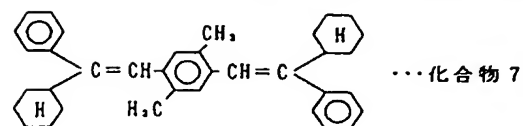
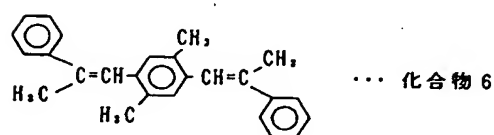
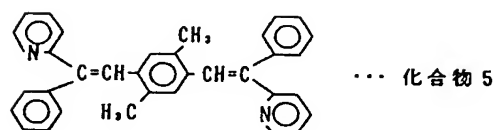
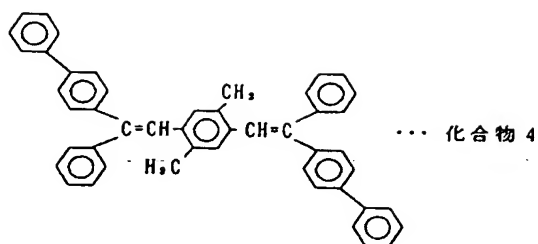
以上が一般式(VI)の製造法であるが、また、一般式(VII)のケトンにおいて、R²、R¹は、製造すべき芳香族ジメチリディン化合物(I)のR²、R¹に対応し、選定される。

この一般式(VI)のリン化合物と一般式(VII)のケトンとの縮合反応は、様々な条件で進行させることができる。ここで、好適に用いられる反応溶媒や縮合剤は、前記方法Aで用いるものと同様である。また、反応温度は、用いる反応原料の種類や他の条件により異なり、一義的に定めることはできないが、通常は約0℃～約100℃まで広範囲に選定することができる。特に好ましくは、0℃～70℃の範囲である。

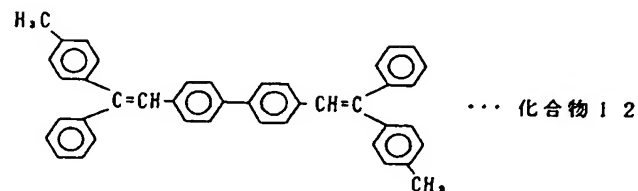
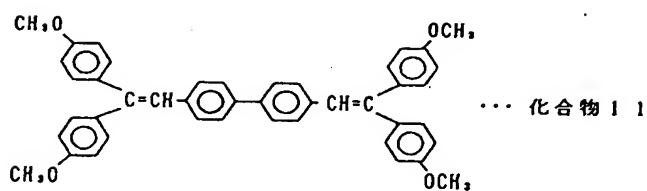
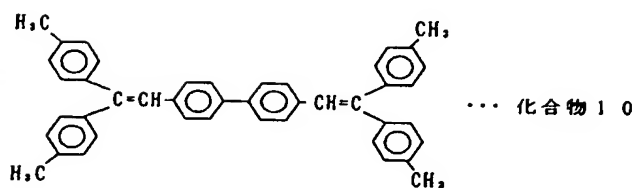
一般式(I)で表わされる化合物の具体例としては、次に示すものを挙げることができる。

- 2 4 -

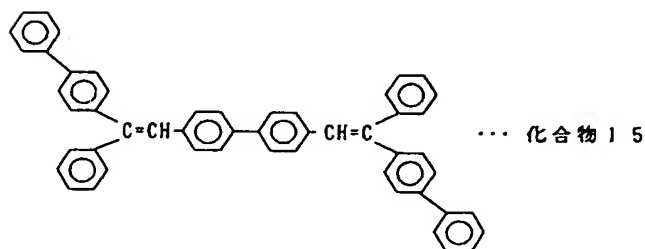
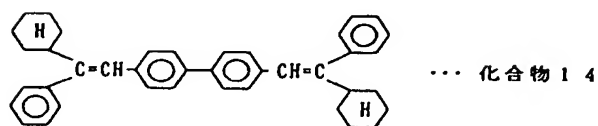
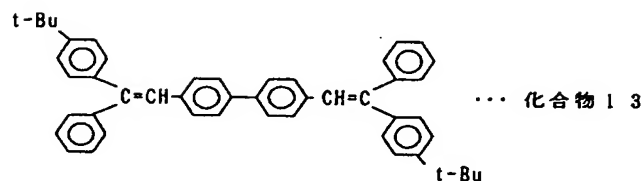


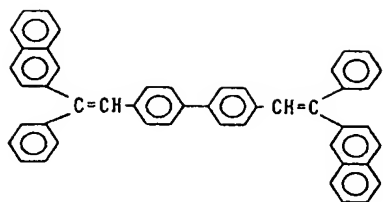


- 2 7 -

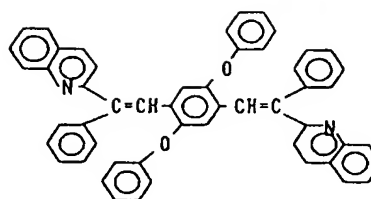


- 2 8 -

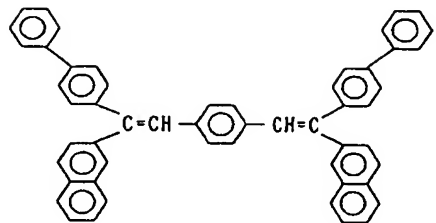




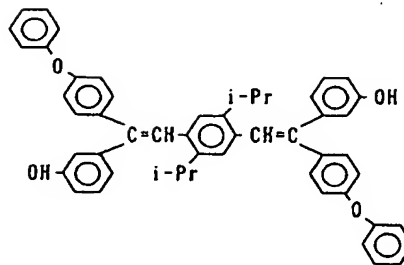
... 化合物 16



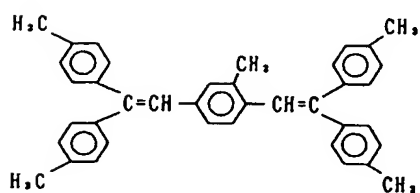
... 化合物 19



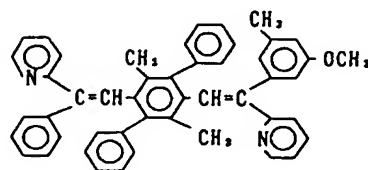
... 化合物 17



... 化合物 20



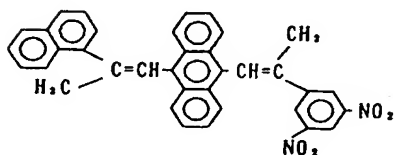
... 化合物 18



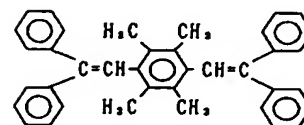
... 化合物 21

- 3 1 -

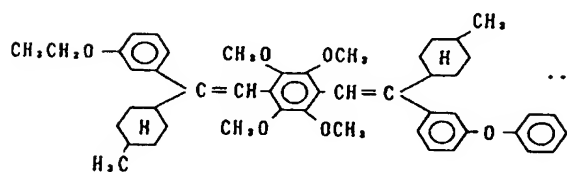
- 3 2 -



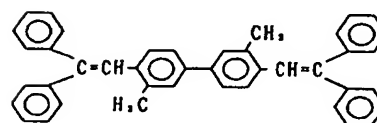
... 化合物 22



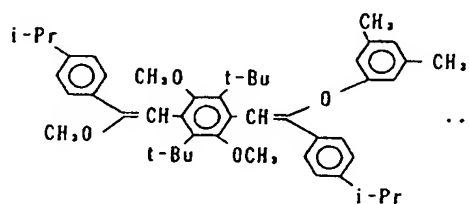
... 化合物 25



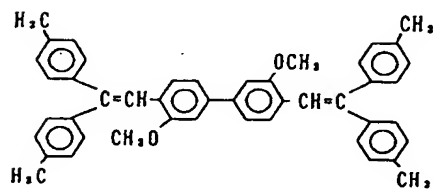
... 化合物 23



... 化合物 26



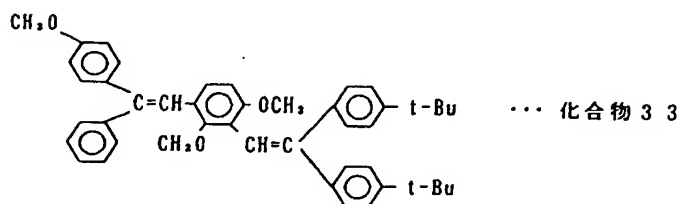
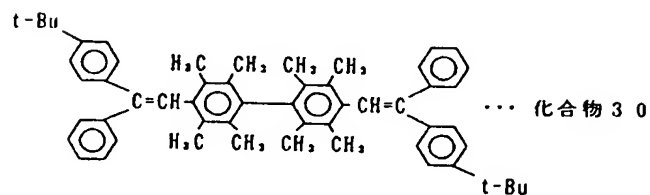
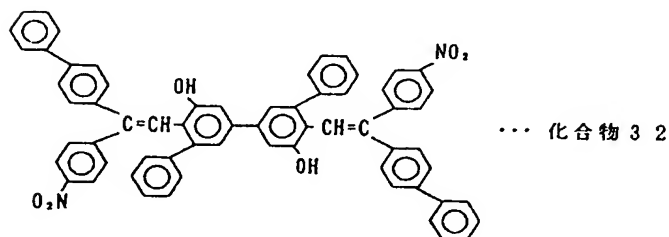
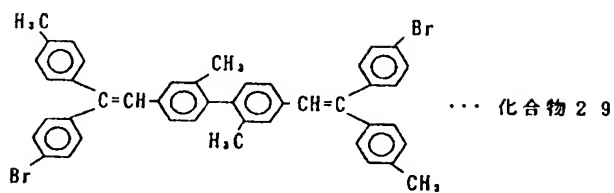
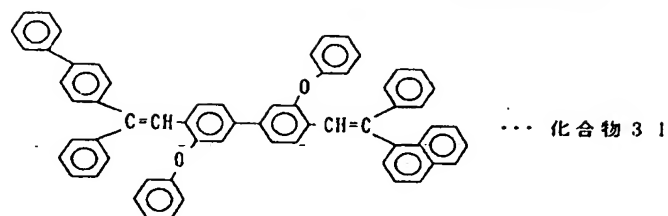
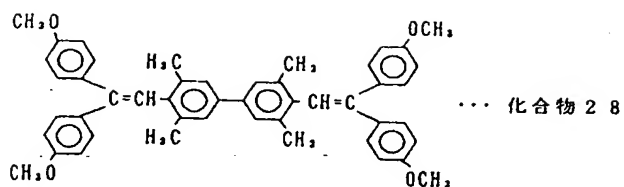
... 化合物 24



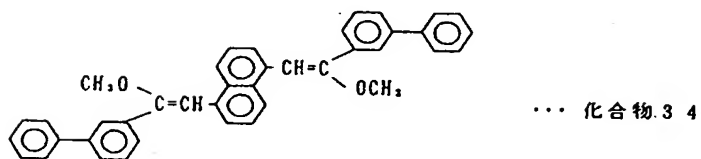
... 化合物 27

- 3 3 -

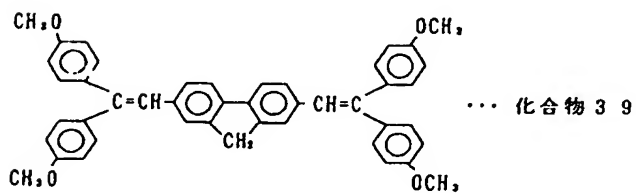
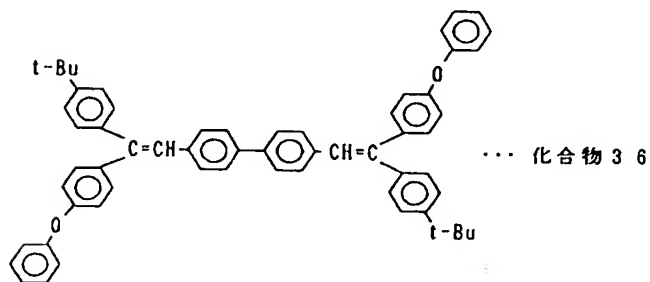
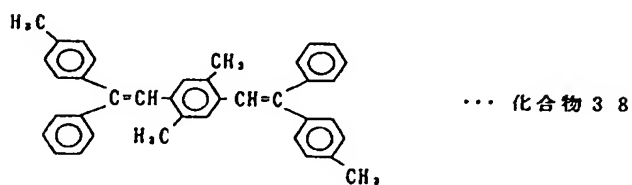
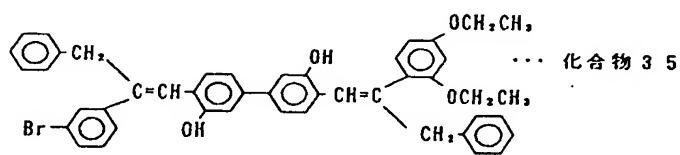
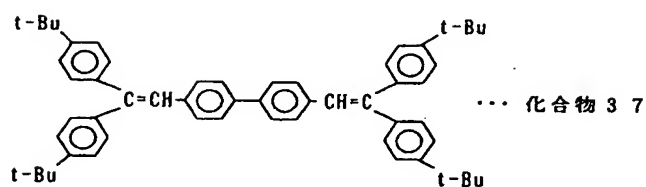
- 3 4 -

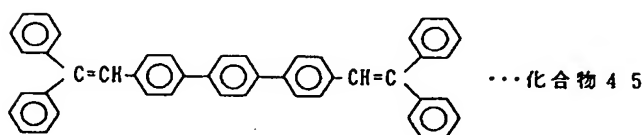
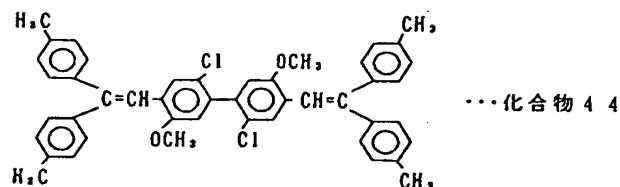
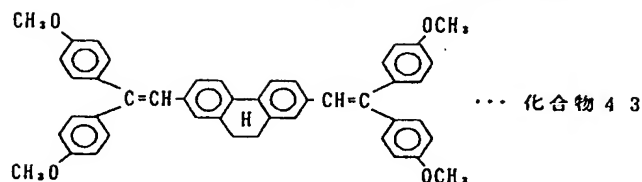
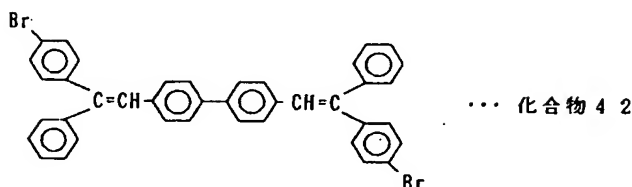
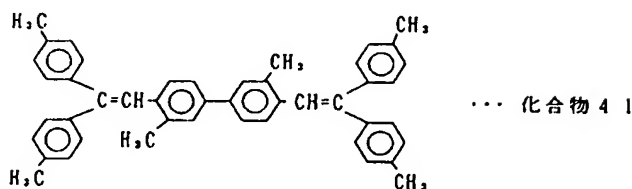
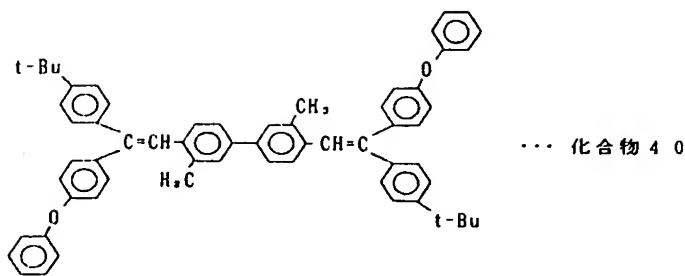


- 3 5 -



- 3 6 -





- 39 -

このようにして得られる本発明の芳香族ジメチリデン化合物は、低電圧で高輝度の発光が可能なEL素子として有効に利用できるものである。この本発明の芳香族ジメチリデン化合物は、EL素子の発光層として不可欠な電子注入機能、電子輸送機能及び発光機能を兼備し、しかも耐熱性、薄膜性にすぐれている。さらに、この芳香族ジメチリデン化合物は、蒸着温度まで加熱しても、分解や変質することなく、均一な微結晶粒からなる緻密な膜が形成できる上、ピンホールが生成しないという長所がある。

すでに述べたように、本発明の前記一般式(I)で表わされる化合物は、EL素子における発光層として有効である。この発光層は、例えば蒸着法、スピンコート法、キャスト法などの公知の方法によって、一般式(I)の化合物を薄膜化してことにより形成することができるが、特に分子堆積膜とすることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、該化合物の気相状態から沈着され形成された薄膜や、該化合物の溶液状態又は液相状態から固体化

- 40 -

され形成された膜のことであり、例えば蒸着膜などを示すが、通常この分子堆積膜はLB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは区別することができる。また、該発光層は、特開昭59-194393号公報などに開示されているように、樹脂などの結着剤と該化合物とを、溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピンコート法などにより薄膜化し、形成することができる。

このようにして形成された発光層の薄膜については特に制限はなく、適宜状況に応じて選ぶことができるが、通常5nmないし5μmの範囲で選定される。

このEL素子における発光層は、(1)電界印加時に、陽極又は正孔注入層により正孔を注入することができ、かつ陰極又は電子注入層より電子を注入することができる注入機能、(2)注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3)電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。

なお、正孔の注入されやすさと、電子の注入されやすさに違いがあってもよいし、正孔と電子の移動度で表わされる輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

この発光層に用いる前記一般式(I)で表わされる化合物は、一般にイオン化エネルギーが6.0 eV程度より小さいので、適当な陽極金属又は陽極化合物を選べば、比較的正孔を注入しやすい。また電子親和力は2.8 eV程度より大きいので、適当な陰極金属又は陰極化合物を選べば、比較的电子を注入しやすい上、電子、正孔の輸送能力も優れている。さらに固体状態の蛍光性が強いので、該化合物やその会合体又は結晶などの電子と正孔の再結晶時に形成された励起状態を光に変換する能力が大きい。

本発明の化合物を用いたEL素子の構成は、各種の態様があるが、基本的には、一対の電極(陽極と陰極)間に、前記発光層を挟持した構成とし、これに必要なに応じて、正孔注入層や電子注入層を

介在させればよい。具体的には(1)陽極/発光層/陰極、(2)陽極/正孔注入層/発光層/陰極、(3)陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極などの構成を挙げることができる。該正孔注入層や電子注入層は、必ずしも必要ではないが、これらの層があると発光性能が一段と向上する。

また、前記構成の素子においては、いずれも基板に支持されていることが好ましく、該基板については特に制限はなく、従来EL素子に慣用されているもの、例えばガラス、透明プラスチック、石英などから成るものを用いることができる。

このEL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAuなどの金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnOなどの誘電性透明材料が挙げられる。該陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることに

- 43 -

より作製することができる。この電極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、電極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。

さらに膜厚は材料にもよるが、通常10 nmないし1 μm、好ましくは10~200 nmの範囲で選ばれる。

一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、Al/AlO₃、インジウムなどが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10 nmないし1 μm、好ましくは50~200 nmの範囲で選ばれる。なお、このEL素子においては、該

- 44 -

陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であることが、発光を透過するため、発光の取出し効率がよく好都合である。

本発明の化合物を用いるEL素子の構成は、前記したように、各種の態様があり、前記(2)又は(3)の構成のEL素子における正孔注入層(正孔注入輸送層)は、正孔伝達化合物からなる層であって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入層を陽極と発光層との間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入され、その上、発光層に陰極又は電子注入層より注入された電子は、発光層と正孔注入層の界面に存在する電子の障壁により、この発光層内の界面付近に蓄積され発光効率が向上するなど、発光性能の優れた素子となる。

前記正孔注入層に用いられる正孔伝達化合物は、電界を与えられた2個の電極間に配置されて陽極から正孔が注入された場合、該正孔を適切に発光層へ伝達しうる化合物であって、例えば10⁻⁴~

10^{-4} V/cm の電界印加時に、少なくとも $10^{-4} \text{ cm/V} \cdot \text{秒}$ の正孔移動度をもつものが好適である。

このような正孔伝達化合物については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導電材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものやE1素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

該電荷輸送材としては、例えばトリアゾール誘導体（米国特許第3,112,197号明細書などに記載のもの）、オキサジアゾール誘導体（米国特許第3,189,447号明細書などに記載のもの）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報などに記載のもの）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許第3,615,402号明細書、同3,820,989号明細書、同3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、

同55-156953号公報、同56-36656号公報などに記載のもの）、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体（米国特許第3,180,729号明細書、同4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報などに記載のもの）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報などに記載のもの）、アリールアミン誘導体（米国特許第3,567,450号明細書、同3,180,703号明細書、同3,240,597号明細書、同3,658,520号明細書、同4,232,103号明細書、

- 47 -

同4,175,961号明細書、同4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書などに記載のもの）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3,526,501号明細書などに記載のもの）、オキサゾール誘導体（米国特許第3,257,203号明細書などに記載のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報などに記載のもの）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報などに記載のもの）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報などに記載されているもの）、スチルベル誘導体（特開昭61-210363号公報、同61-

- 48 -

228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報などに記載のもの）などを挙げることができる。

これらの化合物を正孔伝達化合物として使用することができるが、次に示すポリフィリン化合物（特開昭63-295695号公報などに記載のもの）及び芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物（米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報などに記載のもの）、特に該

芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

該ポリフィリン化合物の代表例としては、ポリフィリン；1，10，15，20-テトラフェニル-21H，23H-ポリフィリン銅(Ⅱ)；1，10，15，20-テトラフェニル-21H，23H-ポリフィリン亜鉛(Ⅱ)；5，10，15，20-テトラキス(ペンタフルオロフェニル)-21H，23H-ポリフィリン；シリコンフタロシアニンオキシド；アルミニウムフタロシアニクロリド；フタロシアニン(無金属)；ジリチウムフタロシアニン；銅テトラメチルフタロシアニン；銅フタロシアニン；クロムフタロシアニン；亜鉛フタロシアニン；鉛フタロシアニン；チタニウムフタロシアニンオキシド；マグネシウムフタロシアニン；銅オクタメチルフタロシアニンなどが挙げられる。また該芳香族第三級化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N，N，N'，N'-テトラフェニル-4，4'-ジアミノビフェニル；N，N'-ジフェニル-N，N'-

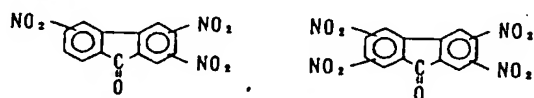
-ジ(3-メチルフェニル)-4，4'-ジアミノビフェニル；2，2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン；1，1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン；N，N，N'，N'-テトラ-p-トリル-4，4'-ジアミノビフェニル；1，1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン；ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン；ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン；N，N'-ジフェニル-N，N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4，4'-ジアミノビフェニル；N，N，N'，N'-テトラフェニル-4，4'-ジアミノジフェニルエーテル；4，4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル；N，N，N-トリ(p-トリル)アミン；4-(ジ-p-トリルアミン)-4'-(4(ジ-p-トリルアミン)スチリル)スチルベン；4-N，N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン；3-メトキシ-4'-N，N-ジフェニルアミノスチルベン；

- 5 1 -

N-フェニルカルバゾールなどが挙げられる。

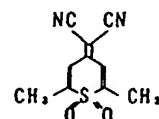
上記E1素子における該正孔注入層は、これらの正孔伝達化合物一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。

一方、前記(3)の構成のE1素子における電子注入層(電子注入輸送層)は、電子伝達化合物からなるものであって、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。このような電子伝達化合物について特に制限はなく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。該電子伝達化合物の好ましい例としては、

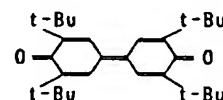


などのニトロ置換フルオレノン誘導体、

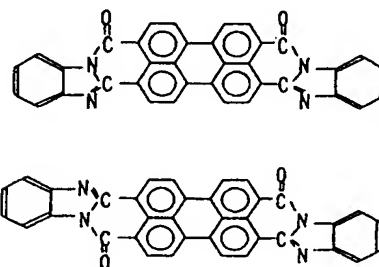
- 5 2 -



などのチオピランジオキシド誘導体、



などのジフェニルキノン誘導体(「ポリマー・プレプリント(Polymer Preprints), ジャパン」第37巻, 第3号, 第681ページ(1988年)などに記載のもの)、あるいは



などの化合物（「ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス（J. Apply. Phys.）」第27巻、第269頁（1988年）などに記載のもの）や、アントラキノジメタン誘導体（特開昭57-149259号公報、同58-55450号公報、同61-225151号公報、同61-233750号公報、同63-104061号公報などに記載のもの）、フレオレニリデンメタン誘導体（特開昭60-69657号公報、同61-143764号公報、同61-148159号公報などに記載のもの）、アントロン誘導体（特開昭61-225151号公報、同61-233750号公報などに記載のもの）などを挙げることができる。

次に、本発明の化合物を用いたEL素子を作製する好適な方法の例を、各構成の素子それぞれについて説明する。前記の陽極／発光層／陰極からなるEL素子の作製法について説明すると、まず適当な基板上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは

$10\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陽極を作製したのち、この上に発光材料である一般式（I）で表わされる化合物の薄膜を形成させ、発光層を設ける。該発光材料の薄膜化の方法としては、例えばスピンコート法、キャスト法、蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくいなどの点から、蒸着法が好ましい。

該発光材料の薄膜化に、この蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する発光層に用いる有機化合物の種類、分子堆積膜の目的とする結晶構造、会合構造などにより異なるが、一般にポート加熱温度 $50\sim 400^\circ\text{C}$ 、真空度 $10^{-3}\sim 10^{-5}\text{Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\sim 50\text{nm/sec}$ 、基板温度 $-50\sim +300^\circ\text{C}$ 、膜厚 5nm ないし $5\mu\text{m}$ の範囲で適宜選ぶことが望ましい。次にこの発光層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $50\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリ

- 55 -

ングなどの方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望のEL素子が得られる。なお、このEL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、発光層、陽極の順に作製することも可能である。

次に、陽極／正孔注入層／発光層／陰極からなるEL素子の作製法について説明すると、まず、陽極を前記のEL素子の場合と同様にして形成したのち、その上に、正孔伝達化合物からなる薄膜を蒸着法などにより形成し、正孔注入層を設ける。この際の蒸着条件は、前記発光材料の薄膜形成の蒸着条件に準じればよい。次に、この正孔注入層の上に、順次発光層及び陰極を、前記EL素子の作製の場合と同様にして設けることにより、所望のEL素子が得られる。

なお、このEL素子の作製においても、作製順序を逆にして、陰極、発光層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

さらに、陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極からなるEL素子の作製法について説明

- 56 -

すると、まず、前記のEL素子の作製の場合と同様にして、陽極、正孔注入層、発光層を順次設けたのち、この発光層の上に、電子伝達化合物からなる薄膜を蒸着法などにより形成し、電子注入層を設け、次いでこの上に、陰極を前記EL素子の作製の場合と同様にして設けることにより、所望のEL素子が得られる。なお、このEL素子の作製においても、作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、発光層、正孔注入層、陽極の順に作製してもよい。

このようにして得られたEL素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧 $5\sim 40\text{V}$ 程度を印加すると、発光が透明又は半透明の電極側より観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

次に、該E1素子の発光メカニズムについて、陽極／正孔注入輸送層／発光層／陰極の構成の場合を例に挙げて説明する。前記陽極を+、陰極を-の極性として電圧を印加すると、該陽極より正孔注入層内に電界により注入される。この注入された正孔は、該正孔注入輸送層内を発光層との界面に向けて輸送され、この界面から発光機能が発現される領域（例えば発光層）に注入又は輸送される。

一方、電子は、陰極から発光層内に電界により注入され、さらに輸送され、正孔のいる領域、すなわち、発光機能が発現される領域で正孔と再結合する（この意味で、前記領域は再結合領域といってもよい）。この再結合が行われると、分子、その会合体又は結晶などの励起状態が形成され、これが光に変換される。なお、再結合領域は、正孔注入輸送層と発光層との界面でもよいし、発光層と陰極との界面でもよく、あるいは両界面より離れた発光層中央部であってもよい。これは使用する化合物の種類、その会合や結晶構造により変

わる。

〔実施例〕

次に本発明を実施例及び応用例に基いてさらに詳しく説明する。

実施例1

(1)アリーレン基含有リン化合物の製造

2, 5-ビス(クロロメチル)キシレン25gと亜リン酸トリエチル45gを、アルゴン気流下オイルバスで、温度150℃で7時間加熱攪拌を行った。

その後、過剰の亜リン酸トリエチル及び副生した塩化エチルを減圧留去した。一晩放置後、白色結晶50g（定量的）を得た。このものの融点は59.0～60.5℃であった。また、¹H-NMR分析は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

δ=6.9 ppm (s; 2H, 中心キシレン環-H)

δ=3.9 ppm (q; 8H, エトキシ基メチレン-CH₂)

δ=3.1 ppm (d; 4H, J=20Hz (³¹P-

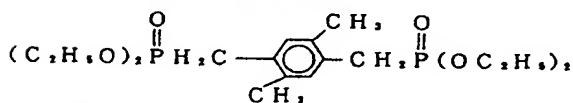
- 59 -

¹Hカップリング) P-CH₂)

δ=2.2 ppm (s; 6H, キシレン環-CH₃)

δ=1.1 ppm (t; 12H, エトキシ基メチル-CH₃)

以上の結果から、上述の生成物は、下記式で表されるアリーレン基含有リン化合物（ホスホネート）であることが確認された。



(2)芳香族ジメチリデン化合物の製造

上記(1)で得られたホスホネート5.3gと2-ベンゾイルビフェニル5.2gを、テトラヒドロフラン100mlに溶解し、これにn-ブチルリチウムを含有（濃度15%）するヘキサン溶液12.3gを加え、アルゴン気流下室温で6時間攪拌した後、一晩放置した。

得られた混合物にメタノール300mlを加え、析出した結晶を濾過した。次いで、濾過生成物を水100mlで3回、続いてメタノール100mlで

- 60 -

3回充分に洗浄し、淡黄色粉末5.5gを得た（収率44%）。このものの融点は187～188℃であった。またこの粉末の¹H-NMR分析は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

δ=7.7～7.0 ppm (m; 30H, 芳香環)

δ=6.7 ppm (s; 2H, メチリデン≡CH=C-)

δ=2.0 ppm (s; 6H, キシレン環-CH₃)

さらに元素分析結果は、組成式C₃₄H₂₄として以下の通りである。なお括弧内は理論値である。

C: 93.79% (93.82%)

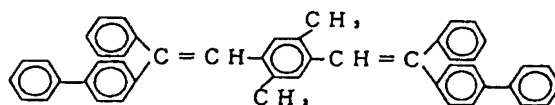
H: 6.06% (6.18%)

N: 0.00% (0%)

また、赤外線（IR）吸収スペクトル（KBr錠剤法）は、以下の通りである。

ν_{max}: 1520, 1620 cm⁻¹

以上のことより、上記生成物である淡黄色粉末は、下記式



- 61 -

- 62 -

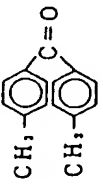
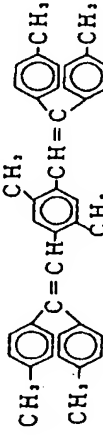
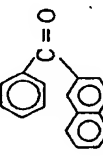
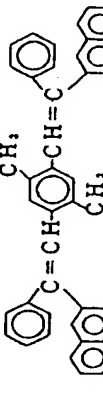
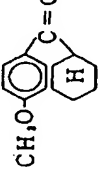
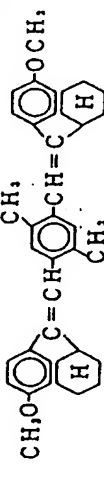
で表わされる 2, 5-キシレンジメチリディン誘導体であることが確認された。

実施例 2～7

実施例 1 (2)において、2-ベンゾイルビフェニルの代わりに、表 1 に示すケトンを用いた他は、実施例 1 (2)と同様に操作し、表 1 に示す 2, 5-キシレンジメチリディン誘導体を得た。

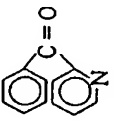
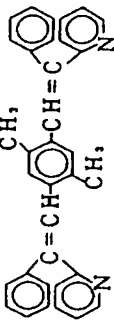
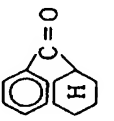
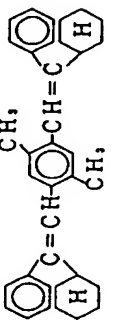
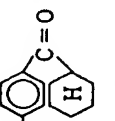
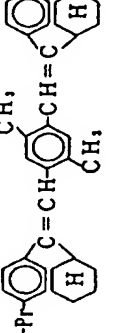
(以下余白)

表 1

ケトン	芳香族ジメチリデン化合物の構造式	組成式 (分子量)	融点 (°C)	¹ H-NMR (CDCl ₃ , TMS)
実施例 2 		C ₁₁ H ₁₂ (132.16)	242 ~ 243.5	δ = 6.9~7.1 ppm (m: 1H, 末端トリル基ベンジル環-H) δ = 6.7 ppm (s: 2H, 中心キリル環-H) δ = 6.5 ppm (s: 2H, メリデン=C=CH-) δ = 2.3 ppm (s: 12H, 末端トリル基-CH ₃) δ = 2.0 ppm (s: 6H, 中心キリル環-CH ₃)
実施例 3 		C ₁₁ H ₁₂ (132.16)	199 ~ 205	δ = 7.0~7.8 ppm (m: 24H, 芳香環) δ = 7.0 ppm (s: 2H, 中心キリル環-H) δ = 6.6 ppm (s: 2H, メリデン=C=CH-) δ = 2.0 ppm (s: 6H, 中心キリル環-CH ₃)
実施例 4 		C ₁₁ H ₁₂ O ₂ (176.22)	172 ~ 174	δ = 6.2~7.2 ppm (m: 12H, 末端ベンジル環及びキリル環-H及びメリデン=C=CH-) δ = 3.8 ppm (s: 6H, メリデン-OCH ₃) δ = 1.9 ppm (s: 6H, 中心キリル環-CH ₃) δ = 0.8~2.0 ppm (b: 22H, シクロヘキソル環)

* マススペクトルの値は m/Z = 534

表 1 (続き)

	ケトン	芳香族ジメチリデン化合物の構造式	組成式 (分子量)	融点 (°C)	¹ H-NMR (CDCl ₃ , TMS)
実施例 5			C ₂₂ H ₁₄ N ₂ (464.34)	192 ~ 192.5	δ=7.0-8.5ppm(m:20H, 末端のvinyl環-H, 中心のvinyl環-H及びvinyl環) δ=6.5ppm(s:2H, 1,4-置換vinyl環-H) δ=2.0ppm(s:6H, 中心のvinyl環-CH ₃)
実施例 6			C ₂₂ H ₁₄ (474.36)	177.5 ~ 179	δ=7.0ppm(s:10H, 芳香環-H) δ=6.2ppm(s:4H, 中心のvinyl環-H及びvinyl環-H) δ=1.8ppm(s:6H, 中心のvinyl環-CH ₃) δ=1.0-2.0ppm(b:22H, 1,4-置換vinyl環)
実施例 7			C ₂₂ H ₁₄ (558.89)	166 ~ 167	δ=6.5-6.9ppm(m:12H, 芳香環-H及びvinyl環-H) δ=2.8ppm(m:2H, 1,4-置換vinyl環-H) δ=1.8ppm(s:6H, 中心のvinyl環-CH ₃) δ=1.2ppm(d:12H, 1,4-置換vinyl環-CH ₃) δ=1.0-2.0ppm(b:22H, 1,4-置換vinyl環)

** マススペクトルの値は m/Z=464である。

*** マススペクトルの値は m/Z=558である。また i-Pr はイソプロピル基を示す。

表 1 (続き)

	性 状	赤外線吸収スペクトル (KBr錠剤法)	元素分析値 (%) () 内は理論値
実施例 2	淡黄色粉末	ν_{C-C} 1510 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 92.60(92.62) H 7.23(7.38) N 0.00(0)
実施例 3	淡黄色粉末	ν_{C-C} 1510 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 93.87(93.85) H 5.82(6.05) N 0.00(0)
実施例 4	淡黄色粉末	ν_{C-C} 1520 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 85.06(85.39) H 8.82(8.61) N 0.00(0)
実施例 5	黄色粉末	ν_{C-C} 1510 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 87.79(87.94) H 5.90(6.03) N 5.87(6.03)
実施例 6	白色粉末	ν_{C-C} 1520 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 91.02(91.15) H 8.89(8.85) N 0.00(0)
実施例 7	白色粉末	ν_{C-C} 1520 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 90.15(90.26) H 9.69(9.74) N 0.00(0)

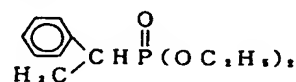
実施例 8 (方法 B)

(I) リン化合物の製造

(1-ブロモエチル)ベンゼン 25.1 g と亜リン酸トリエチル 24.7 g を、アルゴン気流下オイルバスで、温度 150°C で 7 時間加熱攪拌を行った。その後、過剰の亜リン酸トリエチル及び副生したブロモエチルを減圧留去して、透明溶液 22.3 g を得た。このものの¹H-NMR 分析結果は、以下の通りである。

$\delta = 7.2$ ppm (s ; 5 H, ベンゼン環-H)
 $\delta = 3.9$ ppm (q ; 4 H, エトキシ基-OCH₂-)
 $\delta = 2.9 \sim 3.5$ ppm (m ; 1 H, =CH-)
 $\delta = 1.0 \sim 2.0$ ppm (m ; 9 H, エトキシのメチル及び-CH₂)

以上のことより、上記生成物は、下記式で表わされる含有リン化合物(ホスホネート)であることが確認された。



- 6 6 -

(2) 芳香族ジメチリデン化合物の製造

上記(I)で得られたホスホネート 9.7 g と 2, 5-キシレンジカルボキシアリデヒド 3.0 g を、テトラヒドロフラン 100 ml に溶解し、これに n-ブチルリチウム(濃度 15%) を含むヘキサン溶液 3.0 g を加え、アルゴン気流下、室温で 5 時間攪拌した後、一晩放置した。

得られた混合物にメタノール 100 ml を加え、析出した結晶を濾過した。濾過生成物を水 100 ml で 3 回、続いてメタノール 100 ml で 3 回充分に洗浄し、白色鱗片状晶 1.3 g を得た(収率 20%)。

このものの融点は 137.0 ~ 137.8°C であった。また、この結晶の¹H-NMR 分析は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

$\delta = 7.2 \sim 7.5$ ppm (m ; 12 H, ベンゼン環-H,
中心キシレン環-H)

$\delta = 6.8$ ppm (s ; 2 H, メチリデン>CH=C-)

$\delta = 2.3$ ppm (s ; 6 H, メチル基)

- 6 7 -

$\delta = 2.1$ ppm (s ; 6 H, 中心キシレン環-CH₃)

さらに元素分析結果は、組成式 C₂₄H₂₀ として以下の通りである。なお括弧内は理論値である。

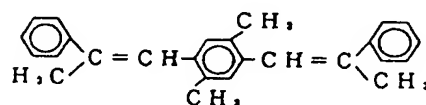
C : 92.26% (92.31%)

H : 7.50% (7.69%)

N : 0.00% (0%)

また、マススペクトルより、目的物の分子イオンピーク m/z = 318 が検出された。

以上のことより、上記生成物である白色鱗片状晶は、下記式



で表わされる 2, 5-キシレンジメチリデン誘導体であることが確認された。

実施例 9

(I) アリーレン基含有リン化合物の製造

4, 4'-ビス(ブロモメチル)ビフェニル 9.0 g と亜リン酸トリエチル 11 g を、アルゴン気流下オイルバスで、温度 140°C で 6 時間加熱攪拌

- 6 8 -

- 6 9 -

を行った。

その後、過剰の亜リン酸トリエチル及び副生した臭化エチルを減圧留去した。一晚放置後、白色結晶 9.5 g (収率 80%) を得た。このものの融点は 97.0 ~ 100.0 °C であった。また、¹H-NMR 分析結果は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

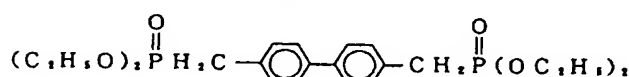
δ = 7.0 ~ 7.6 ppm (m : 8 H, ビフェニレン環-H)

δ = 4.0 ppm (q : 8 H, エトキシ基メチレン-CH₂)

δ = 3.1 ppm (d : 4 H, J = 20 Hz (³¹P-¹H
カップリング) P-CH₃)

δ = 1.3 ppm (t : 12 H, エトキシ基メチル-CH₃)

以上の結果から、上述の生成物は、下記式で表されるアリーレン基含有リン化合物(ホスホネート)であることが確認された。



(2) 芳香族ジメチリジン化合物の製造

上記(1)で得られたホスホネート 4.0 g とシク

ロヘキシルフェニルケトン 5.0 g を、ジメチルスルホキシド 60 ml に溶解し、カリウム-*t*-ブトキシド 2.0 g を加え、アルゴン気流下、還流撹拌した後、一晚放置した。

得られた混合物の溶媒を留去した後、メタノール 200 ml を加え、析出した結晶を濾過した。次いで、濾過生成物を水 100 ml で 3 回、続いてメタノール 100 ml で 3 回十分に洗浄し、ベンゼンにて再結晶したところ、淡黄色粉末 1.0 g が得られた(収率 22%)。このものの融点は 153 ~ 155 °C であった。またこの粉末の¹H-NMR 分析結果は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 6.3 ~ 7.5 ppm (b : 18 H, 芳香環及びメチリジン>CH=C-)

δ = 1.0 ~ 2.0 ppm (b : 22 H, シクロヘキサン環)

さらに元素分析結果は、組成式 C₄₄H₄₄ として以下の通りである。なお括弧内は理論値である。

- 70 -

C : 91.74% (91.90%)

H : 8.25% (8.10%)

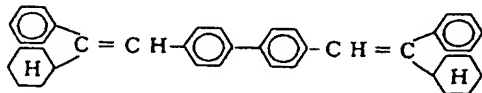
N : 0.00% (0%)

また、赤外線(IR)吸収スペクトル(kBr錠剤法)は、以下の通りである。

ν_{c-c} 1520, 1610 cm⁻¹

また、マスペクトルより、目的物の分子イオンピーク m/Z = 522 が検出された。

以上のことより、上記生成物である淡黄色粉末は、下記式



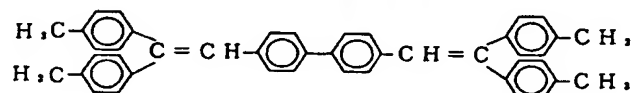
で表される 4, 4'-ビフェニレンジメチリジン誘導体であることが確認された。

実施例 10

実施例 9(2)において、シクロヘキシルフェニルケトンの代わりに 4, 4'-ジメチルベンゾフェノン、ジメチルスルホキシドの代わりにテトラヒドロフランをそれぞれ用いた他は、実施例 9(2)と同様に操作して、以下に示す 4, 4'-ビフェ

- 71 -

ニレンジメチリジン誘導体を得た。



このものの分析結果等は、以下の通りである。

融点: 228 ~ 230 °C

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 6.7 ~ 7.3 ppm (m : 26 H, 芳香環-H 及

びメチリジン>CH=C-)

δ = 2.4 ppm (s : 12 H, p-トリルメチル基-CH₃)

性状: 淡黄色粉末

マスペクトルの分子イオンピーク: m/Z = 566

元素分析値: 組成式 C₄₄H₄₄ として以下の通りである。なお括弧内は理論値である。

C : 93.10% (93.24%)

H : 7.04% (6.76%)

N : 0.00% (0%)

実施例 11

(1) アリーレン基含有リン化合物の製造

2, 6-ビス(ブロモメチル)ナフタレン 2.4.3 g と亜リン酸トリエチル 5.0 g を、アルゴン気流下オイルバスで、温度 120℃ で 7 時間加熱撹拌を行った。

その後、過剰の亜リン酸トリエチル及び副生した臭化エチルを減圧留去した。一晚放置後、淡黄色結晶 32.5 g (収率定量的)を得た。このものの融点は 144.5~146.0℃ であった。また、¹H-NMR 分析結果は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 7.2~7.8 ppm (m : 6 H, ナフチレン環-H)

δ = 4.0 ppm (q : 8 H, エトキシ基メチレン -CH₂)

δ = 3.3 ppm (d : 4 H, J = 20 Hz (³¹P-¹H カップリング) P-CH₃)

δ = 1.2 ppm (t : 12 H, エトキシ基メチル -CH₃)

以上の結果から、上述の生成物は、下記式で表わされるアリーレン基含有リン化合物(ホスホネート)であることが確認された。

- 74 -

ディン >CH=C-

δ = 1.0~2.0 ppm (b : 22 H, シクロヘキサン環)

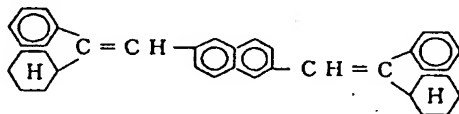
さらに元素分析結果は、組成式 C₃₄H₄₀ とし以下の通りである。なお括弧内は理論値である。

C : 91.63% (91.88%)

H : 8.20% (8.12%)

N : 0.00% (0%)

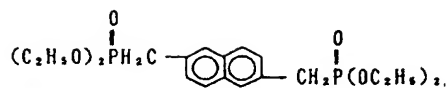
以上のことより、上記生成物である淡黄色粉末は、下記式



で表わされる 2, 6-ナフチレンジメチリディン誘導体であることが確認された。

実施例 12

実施例 11(2)において、シクロヘキシルフェニルケトンの代わりに 4, 4'-ジメチルベンゾフェノン、カリウム-*t*-ブトキシドの代わりに *n*-ブチルリチウムをそれぞれ用いた他は、実施



(2) 芳香族ジメチリディン化合物の製造

上記(1)で得られたホスホネート 5.0 g とシクロヘキシルフェニルケトン 5.0 g を、テトラヒドロフラン 100 ml に溶解し、カリウム-*t*-ブトキシド 2.5 g を加え、アルゴン気流下、還流撹拌した後、一晚放置した。

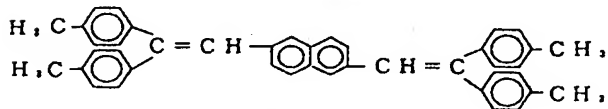
得られた混合物の溶媒を留去した後、メタノール 100 ml を加え、析出した結晶を濾過した。次いで濾過生成物を水 100 ml で 2 回、続いてメタノール 100 ml で 2 回十分に洗浄し、ベンゼンにて再結晶したところ、淡黄色粉末 1.0 g が得られた(収率 20%)。このものの融点は 215~216℃ であった。またこの粉末の ¹H-NMR 分析結果は以下の通りである。

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 6.2~7.2 ppm (m : 18 H, 芳香環-H 及びナフチレン環-H 及びメチリ

- 75 -

例 11(2)と同様に操作して、以下に示す 2, 6-ナフチレンジメチリディン誘導体を得た。



このものの分析結果は以下の通りである。

融点 : 269~271℃

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 6.7~7.2 ppm (m : 24 H, 芳香環-H 及びメチリディン >CH=C-)

δ = 2.4 ppm (s : 12 H, *p*-トリルメチル基 -CH₃)

性状 : 黄色粉末

元素分析値 : 組成式 C₄₂H₃₈ とし以下の通りである。なお括弧内は理論値である。

C : 93.03% (93.29%)

H : 6.81% (6.71%)

N : 0.00% (0%)

実施例 13

(1) アリーレン基含有リン化合物の製造

9. 10-ビス(クロロメチル)アントラセン
10 g と亜リン酸トリエチル 35 g を、アルゴン
気流下オイルバスで、温度 130 °C で 6 時間加熱
攪拌を行った。

その後、過剰の亜リン酸トリエチル及び副生し
た塩化エチルを減圧留去した。一晩放置後、得ら
れた淡緑色結晶を、ベンゼン-ヘキサンより再結
晶し、淡黄色鱗片状品 16 g (収率 92%) を得た。

このものの分析結果等は、以下の通りである。

融点: 160 ~ 161.5 °C

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 7.3 ~ 8.4 ppm (m : 8 H, アセトラセン環
-H)

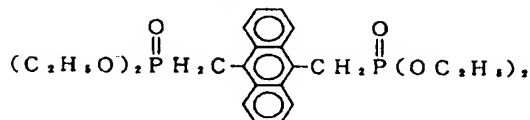
δ = 4.1 ppm (d : 4 H, J = 20 Hz (³¹P-¹H
カップリング) P-CH₂)

δ = 3.7 ppm (q : 8 H, エトキシ基メチレン
-CH₂)

δ = 1.0 ppm (t : 12 H, エトキシ基メチル
-CH₃)

以上の結果から、上述の生成物は、下記式で表

わされるアリーレン基含有リン化合物(ホスホネ
ート)であることが確認された。



(2) 芳香族ジメチリディン化合物の製造

上記(1)で得られたホスホネート 3.0 g と 4, 4'-
ジメチルベンゾフェノン 2.5 g を、テトラヒ
ドロフラン 100 ml に溶解し、これに n-ブチル
リチウム(濃度 15%) を含むヘキサン溶液 5 g を
加え、アルゴン気流下、室温で 4 時間攪拌した後、
一晩放置した。

得られた混合物にメタノール 100 ml を加え、
析出した結晶を濾過した。濾過生成物を水 100
ml で 3 回、続いてメタノール 100 ml で 3 回充分
に洗浄し、トルエンより再結晶し、黄橙色粉末
0.7 g を得た(収率 19%)。

このものの分析結果等は、以下の通りである。

融点: 297 ~ 298 °C

- 78 -

¹H-NMR (CDCl₃)

δ = 6.5 ~ 7.5 ppm (m : 26 H, 芳香環-H,
アセトラセン-H 及びメチ
リディン ≡ CH=C-)

δ = 2.2 ppm (d : 12 H, p-トリルメチル基
-CH₃)

元素分析値: 組成式 C₄₄H₂₆ として以下の通り
である。なお括弧内は理論値である。

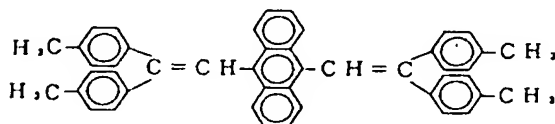
C: 93.42% (93.52%)

H: 6.53% (6.48%)

N: 0.00% (0%)

また、マスマスペクトルより目的物の分子イオン
ピーク m/Z = 590 が検出された。

以上のことより、上記生成物である黄橙色粉末
は、下記式



で表わされる 9, 10-アセトラセンジイルジメ

- 79 -

チリディン誘導体であることが確認された。

実施例 14 ~ 26

以下、対応するケトン及びホスホン酸エステル
を用い、表 2 に示す化合物を合成した。

(以下余白)

表 2

実施例	芳香族ジメチリデン化合物の 構造式	組成式 (分子量)	融点 (°C)	¹ H-NMR (CDCl ₃ , TMS)
実施例 14	化合物 1	C ₁₁ H ₁₀ (462.63)	204.0 ~ 205.0	δ=6.9~7.1 ppm (m; 20 H, 末端フェニル環-H) δ=6.7 ppm (s; 2 H, 中心キシレン環-H) δ=6.5 ppm (s; 2 H, メチリデン>C=CH-) δ=2.0 ppm (s; 6 H, 中心キシレン環-CH ₃)
実施例 15	化合物 38	C ₁₁ H ₁₀ (490.69)	121 ~ 127	δ=6.9~7.1 ppm (m; 18 H, 末端フェニル環-H) δ=6.7 ppm (s; 2 H, 中心キシレン環-H) δ=6.5 ppm (s; 2 H, メチリデン>C=CH-) δ=2.3 ppm (s; 6 H, 末端トリル基-CH ₃) δ=2.0 ppm (s; 6 H, 中心キシレン環-CH ₃)
実施例 16	化合物 9**	C ₁₁ H ₁₀ (510.68)	204.5 ~ 206.5	δ=6.7~7.3 ppm (m; 30 H, 末端フェニル環-H 中心ビフェニレン-H メチリデン>C=CH-)
実施例 17	化合物 12**	C ₁₁ H ₁₀ (538.73)	165 ~ 169	δ=6.7~7.3 ppm (m; 28 H, 末端フェニル環-H 中心ビフェニレン-H メチリデン>C=CH-) δ=2.3 ppm (s; 6 H, 末端トリル基-CH ₃)

*1 マススペクトルの値はm/Z=510である。

*2 マススペクトルの値はm/Z=538である。

表 2 (続き)

	性状	赤外線吸収スペクトル (KBr錠剤法)	元素分析値(%) ()内は理論値	製造方法
実施例14	黄色柱状晶	ν_{c-c} 1510 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 93.38 (93.46) H 6.49 (6.54) N 0.00 (0)	A
実施例15	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1510 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 92.95 (93.02) H 6.91 (6.98) N 0.00 (0)	A
実施例16	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 94.23 (94.08) H 5.84 (5.92) N 0.00 (0)	A
実施例17	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 93.48 (93.64) H 6.41 (6.36) N 0.00 (0)	A

表 2 (続き)

実施例	芳香族ジメチリデン化合物の 構造式	組成式 (分子量)	融点 (°C)	¹ H-NMR (CDCl ₃ , TMS)
実施例 18	化合物 11	C ₁₄ H ₁₆ O ₄ (630.78)	218 ~ 218.5	δ=6.7~7.3 ppm (m; 26H, 末端フェニル環-H 中心ビフェニレン-H メチリデン>C=CH-) δ=3.8 ppm (s; 12H, 末端メトキシ-OCH ₃),
実施例 19	化合物 13	C ₁₄ H ₁₆ (622.89)	202.0 ~ 204.0	δ=7.0~7.4 ppm (m; 26H, 末端フェニル環-H 中心ビフェニレン-H) δ=6.9 ppm (s; 2H, メチリデン>C=CH-) δ=1.3 ppm (s; 18H, t-ブチル基 -C-CH ₃ , CH ₃),
実施例 20	化合物 37	C ₁₄ H ₁₆ (735.11)	293.0 ~ 296.0	δ=7.0~7.4 ppm (m; 24H, 末端フェニル環-H 中心ビフェニレン-H) δ=6.9 ppm (s; 2H, メチリデン>C=CH-) δ=1.3 ppm (s; 36H, t-ブチル基 -C-CH ₃ , CH ₃),

* 3 マススペクトルの値はm/Z=622である。またt-Buはターシャブチル基を示す。

* 4 マススペクトルの値はm/Z=734である。またt-Buはターシャブチル基を示す。

表 2 (続き)

	性状	赤外線吸収スペクトル (KBr錠剤法)	元素分析値(%) ()内は理論値	製造方法
実施例18	黄緑色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1620 cm^{-1}	C 83.51 (83.78) H 5.89 (6.07) N 0.00 (0)	A
実施例19	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 92.38 (92.56) H 7.18 (7.44) N 0.00 (0)	A
実施例20	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 91.42 (91.50) H 8.45 (8.50) N 0.00 (0)	A

表 2 (続き)

実施例	芳香族ジメチリデン化合物の 構造式	組成式 (分子重)	融点 (°C)	¹ H-NMR (CDCl ₃ , TMS)
実施例 2 1	化合物 16 ⁰⁵	C ₁₁ H ₁₄ (610.80)	255 ~	δ=7.2~7.8 ppm (m: 3 2 H, 末端フェニル及び ナフタレン-H) 中心ジフェニレン-H)
実施例 2 2	化合物 15 ⁰¹	C ₁₁ H ₁₄ (662.87)	235.0 ~	δ=7.1 ppm (s: 2 H, メチリデン=C=CH-) δ=7.2~7.8 ppm (m: 3 6 H, 末端フェニル及び ビフェニル-H) 中心ジフェニレン-H)
実施例 2 3	化合物 40 ⁰⁷	C ₁₂ H ₁₆ O ₂ (835.14)	100.0 ~ 102.0	δ=7.0 ppm (s: 2 H, メチリデン=C=CH-) δ=6.9~7.3 ppm (m: 3 2 H, 芳香環-H) δ=6.8 ppm (s: 2 H, メチリデン=C=CH-) δ=2.3 ppm (s: 6 H, 中心ジフェニル-CH ₂) δ=1.3 ppm (s: 1 8 H, t-ブチル基)

*5 マススペクトルの値はm/Z=610である。

*6 マススペクトルの値はm/Z=662である。

*7 マススペクトルの値はm/Z=834である。

表 2 (続き)

	性状	赤外線吸収スペクトル (KBr錠剤法)	元素分析値(%) ()内は理論値	製造方法
実施例21	黄緑色粉末	ν_{C-C} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 94.21 (94.39) H 5.70 (5.61) N 0.00 (0)	A
実施例22	黄緑色粉末	ν_{C-C} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 94.41 (94.22) H 5.89 (5.78) N 0.00 (0)	A
実施例23	淡黄色粉末	ν_{C-C} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 88.87 (89.17) H 7.18 (7.00) N 0.00 (0)	A

表 2 (続き)

芳香族ジメチリデン化合物の 構造式	組成式 (分子量)	融点 (°C)	¹ H-NMR (CDCl ₃ , TMS)
実施例 24 化合物 26**	C ₁₁ H ₁₁ (538.73)	201.8 ~ 202.8	δ=6.9~7.3 ppm (m; 26H, 末端フェニル基-H 中心ビフェニレン-H) δ=6.8 ppm (s; 2H, メチリデン=C=CH-) δ=2.2 ppm (s; 6H, 中心ビフェニレン-CH ₃)
実施例 25 化合物 41**	C ₁₁ H ₁₁ (594.84)	224.0 ~ 225.0	δ=6.9~7.3 ppm (m; 22H, 末端トリル基-H 中心ビフェニレン-H) δ=6.8 ppm (s; 2H, メチリデン=C=CH-) δ=2.3 ppm (s; 12H, 末端トリル基-CH ₃) δ=2.2 ppm (s; 6H, 中心ビフェニレン-CH ₃)
実施例 26 化合物 42	C ₁₁ H ₁₁ Br ₂ (668.46)	226.0 ~ 250.0	δ=7.0~7.5 ppm (m; 26H, 末端フェニル基-H 中心ビフェニレン-H) δ=6.8 ppm (s; 2H, メチリデン=C=CH-)

*8 マススペクトルの値はm/Z=538である。

*9 マススペクトルの値はm/Z=594である。

表 2 (続き)

	性状	赤外線吸収スペクトル (KBr錠剤法)	元素分析値(%) ()内は理論値	製造方法
実施例 2 4	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 93.31 (93.64) H 6.14 (6.36) N 0.00 (0)	A
実施例 2 5	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 93.10 (92.88) H 6.97 (7.12) N 0.00 (0)	A
実施例 2 6	淡黄色粉末	ν_{c-c} 1520 cm^{-1} 1610 cm^{-1}	C 72.11 (71.87) H 3.98 (4.22) N 0.00 (0)	A

- 8 9 -

応用例 1

25 mm × 75 mm × 1.1 mm のガラス基板上にITOを蒸着法にて100 nmの厚さで製膜したもの(HOYA製)を透明支持基板とした。

この透明支持基板を市販の蒸着装置(日本真空技術製)の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにTPDAを200 mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例1で得られた2,5-キシレンジメチリデン誘導体である2,5-ビス(2-フェニル-2-ビフェニルビニル)キシレン(BPVX)を200 mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後TPDA入りの前記ポートを、215~220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60 nmの正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりBPVXを発光層として80 nm積層蒸着した。蒸着条

件は、ポート温度が184℃で蒸着速度は0.2~0.4 nm/秒、基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1 gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウムを500 mg装着した。

その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03~0.08 nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを1.7~2.8 nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に150 nm積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧20 Vを印加すると電流が170 mA/

cd程度流れ、色度座標でBluish Green発光を得た。ピーク波長は分光測定より499nmであり、発光輝度は1000cd/m²以上であった。

応用例 2

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100nmの厚さで製膜したもの(HOYA製)を透明支持基板とした。

この透明支持基板をUVオゾン処理装置(日本電池社製)にて2分間UVオゾン洗浄を行った。

次いで、市販の蒸着装置(日本真空技術㈱製)の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにTPDAを200mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例2で得られた2,5-キシレンジメチリデン誘導体である2,5-ビス(2,2-ジ-*p*-トリルビニル)キシレン(DTVX)を200mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後TPDAの入った前記ポートを215~220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1~0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜

厚60nmの正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりDTVXを発光層として80nm積層蒸着した。蒸着条件は、ポート温度が215℃で、蒸着速度は0.2~0.4nm/秒、基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500mgを装着した。

その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03~0.08nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを1.7~2.8nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジ

- 9 2 -

ウムの混合金属電極を発光層の上に150nm積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧5Vを印加すると電流が6.3mA/cd程度流れ、発光輝度300cd/m²、色度座標でGreenish Blue発光を得た。ピーク波長は分光測定より486nmであった。この時の発光効率は2.9lm/Wであった。なお直流7V印加の時、発光輝度は1000cd/m²以上であることを確認した。

応用例 3

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100nmの厚さで製膜したもの(HOYA製)を透明支持基板とした。

この透明支持基板を市販の蒸着装置(日本真空技術㈱製)の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにTPDAを200mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例3で得られた2,5-キシレンジメチリデン誘導体である

- 9 3 -

2,5-ビス(2-フェニル-2-(2-ナフチル)ビニル)キシレン(NPVX)を200mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後TPDAの入った前記ポートを215~220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1~0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60nmの正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりNPVXを発光層として80nm積層蒸着した。蒸着条件は、ポート温度が147℃で、蒸着速度は0.2~0.4nm/秒、基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500mgを装着した。

その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してか

ら、インジウムを $0.03 \sim 0.08 \text{ nm/秒}$ の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを $1.7 \sim 2.8 \text{ nm/秒}$ の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ 800°C 、 500°C 程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に 150 nm 積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧 17.5 V を印加すると電流が 220 mA/cm^2 程度流れ、色度座標で Bluish Green 発光を得た。ピーク波長は分光測定より 502 nm であり、発光輝度は 1000 cd/m^2 であった。

応用例 4

$25 \text{ mm} \times 75 \text{ mm} \times 1.1 \text{ mm}$ のガラス基板上に ITO を蒸着法にて 100 nm の厚さで製膜したもの (HOYA 製) を透明支持基板とした。

この透明支持基板を市販の蒸着装置 (日本真空技術製) の基板ホルダーに固定し、モリブテン

製の抵抗加熱ポートに TPDA を 200 mg 入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例 5 で得られた 2, 5-キシレンジメチリデン誘導体である 2, 5-ビス (2-フェニル-2-(2-ビリジル)ビニル) キシレン (PPVX) を 200 mg 入れて真空槽を $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した。

その後 TPDA の入った前記ポートを $215 \sim 220^\circ\text{C}$ まで加熱し、TPDA を蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 \text{ nm/秒}$ で透明支持基板上に蒸着して、膜厚 60 nm の正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートより PPVX を発光層として 80 nm 積層蒸着した。蒸着条件は、ポート温度が 198°C で、蒸着速度は $0.2 \sim 0.4 \text{ nm/秒}$ 、基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシ

- 96 -

ウムリボン 1 g を入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム 500 mg を装着した。

その後真空槽を $2 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧してから、インジウムを $0.03 \sim 0.08 \text{ nm/秒}$ の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを $1.7 \sim 2.8 \text{ nm/秒}$ の蒸着速度で蒸着し始めた。

ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ 800°C 、 500°C 程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に 150 nm 積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧 12.5 V を印加すると電流が 50 mA/cm^2 程度流れ、色度座標で Green 発光を得た。ピーク波長は分光測定より 531 nm であり、発光輝度は 100 cd/m^2 であった。

応用例 5

$25 \text{ mm} \times 75 \text{ mm} \times 1.1 \text{ mm}$ のガラス基板上に ITO

- 97 -

O を蒸着法にて 100 nm の厚さで製膜したもの (HOYA 製) を透明支持基板とした。

この透明支持基板を市販の蒸着装置 (日本真空技術製) の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートに TPDA を 200 mg 入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例 8 で得られた 2, 5-キシレンジメチリデン誘導体である 2, 5-ビス (2-フェニル-2-メチルビニル) キシレン (MePVX) を 200 mg 入れて真空槽を $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した。

その後 TPDA の入った前記ポートを、 $215 \sim 220^\circ\text{C}$ まで加熱し、TPDA を蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 \text{ nm/秒}$ で透明支持基板上に蒸着して、膜厚 60 nm の正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートより MePVX を発光層として 80 nm 積層蒸着した。蒸着条件はポート温度が 152°C で蒸着速度は $0.2 \sim 0.4 \text{ nm/秒}$ 、基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500mgを装着した。その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03~0.08nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを1.7~2.8nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に150nm積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧10Vを印加すると電流が140mA/㎠程度流れ、色度座標でPurplish Blue発光を得た。ピーク波長は分光測定より438nmであり、

- 100 -

基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりCPVBiを発光層として80nm積層蒸着した。蒸着条件はポート温度が210℃で蒸着速度は0.1~0.3nm/秒、基板温度は室温であった。

これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500mgを装着した。

その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03~0.08nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを1.7~2.8nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に150nm積

- 102 -

発光輝度は20cd/㎡程度であった。

応用例 6

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100nmの厚さで製膜したもの(HOYA製)を透明支持基板とした。この透明支持基板をUVオゾン処理装置にて2分間UVオゾン洗浄を行った。

この透明支持基板を市販の蒸着装置(日本真空技術(株)製の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにTPDAを200mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例9で得られた4,4'-ビフェニレンジメチリデン誘導体である4,4'-ビス(2-シクロヘキシル-2-フェニルビニル)ビフェニル(CPVBi)を200mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後TPDAの入った前記ポートを、215~220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1~0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60nmの正孔注入層を製膜させた。この時の

- 101 -

層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧7.5Vを印加すると電流が14mA/㎠程度流れ、色度座標でPurplish Blue発光を得た。ピーク波長は分光測定より441nmであり、発光輝度は200cd/㎡程度であった。

応用例 7

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100nmの厚さで製膜したもの(HOYA製)を透明支持基板とした。この透明支持基板をUVオゾン処理装置にて2分間UVオゾン洗浄を行った。

この透明支持基板を市販の蒸着装置(日本真空技術(株)製の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにTPDAを200mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例10で得られた4,4'-ビフェニレンジメチリデン誘導体である4,4'-ビス(2-ジ-*p*-トリルビニル)ビフェニル(DTVBi)を200mg入れて

- 103 -

真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後TPDAの入った前記ポートを、215～220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1～0.3 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60 nmの正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりDTV-Biを発光層として80 nm積層蒸着した。蒸着条件はポート温度が253～271℃で蒸着速度は0.1～0.3 nm/秒、基板温度は室温であった。これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1 gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500 mgを装着した。

その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03～0.08 nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシ

ウムを1.7～2.8 nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に150 nm積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧15 Vを印加すると電流が32 mA/cm²程度流れ、色度座標でBlue発光を得た。ピーク波長は分光測定より473 nmであり、最高発光輝度は1000 cd/m²以上であった。

応用例 8

25 mm×75 mm×1.1 mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100 nmの厚さで製膜したもの(HOYA製)を透明支持基板とした。この透明支持基板をUVオゾン処理装置にて2分間UVオゾン洗浄を行った。

この透明支持基板を市販の蒸着装置(日本真空技術製)の基板ホルダーに固定し、モリブテン

- 104 -

製の抵抗加熱ポートにTPDAを200 mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例12で得られた2,6-ナフチレンジメチリデン誘導体である2,6-ビス(2,2-ジ-*p*-トリルビニル)ナフタレン(DTVN)を200 mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後、TPDAの入った前記ポートを、215～220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1～0.3 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60 nmの正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりDTV-Nを発光層として80 nm積層蒸着した。蒸着条件はポート温度が276～278℃で、蒸着速度は0.1～0.3 nm/秒、基板温度は室温であった。これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシ

- 105 -

ウムリボン1 gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500 mgを装着した。

その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03～0.08 nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを1.7～2.8 nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に150 nm積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧12 Vを印加すると電流が350 mA/cm²程度流れ、色度座標でGreenish Blue発光を得た。ピーク波長は分光測定より486 nmであり、発光輝度は20 cd/m²程度であった。

応用例 9

25 mm×75 mm×1.1 mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100 nmの厚さで製膜したもの

- 106 -

- 107 -

(HOYA製)を透明支持基板とした。この透明支持基板をUVオゾン処理装置にて2分間UVオゾン洗浄を行った。

この透明支持基板を市販の蒸着装置(日本真空技術(株)製)の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにTPDAを200mg入れ、また別のモリブテン製ポートに実施例13で得られた9,10-アントラセンジイルジメチリデン誘導体である9,10-ビス(2,2-ジ-*p*-トリルビニル)アントラセン(DTVA)を200mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

その後TPDAの入った前記ポートを、215~220℃まで加熱し、TPDAを蒸着速度0.1~0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60nmの正孔注入層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入層の上に、もう一つのポートよりDTVAを発光層として80nm積層蒸着した。蒸着条件はポート温度が270℃で、蒸着速度は0.1

~0.3nm/秒、基板温度は室温であった。これを真空槽より取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

次にモリブテン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1gを入れ、また別のモリブテン製の抵抗加熱ポートにインジウム500mgを装着した。その後真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、インジウムを0.03~0.08nm/秒の蒸着速度で、同時にもう一方のポートよりマグネシウムを1.7~2.8nm/秒の蒸着速度で蒸着し始めた。ポートの温度はインジウム入り、マグネシウム入りのポートそれぞれ800℃、500℃程度であった。上記条件でマグネシウムとインジウムの混合金属電極を発光層の上に150nm積層蒸着して対向電極とし、素子を形成した。

ITO電極を陽極、マグネシウムとインジウムの混合金属電極を陰極として、得られた素子に、直流電圧10Vを印加すると電流が350mA/cm程度流れ、色度座標でGreen発光を得た。ピー

- 108 -

ク波長は分光測定より526nmであり、発光輝度は400cd/m²以上であった。

応用例10~19

応用例9において、発光材料は変えた他は応用例9と同様に操作して、EL素子を形成した。これらのEL発光特性を表3に示す。

(以下余白)

- 109 -

表 3

	発光層の材料	正孔注入層の材料及び膜厚 (nm)	発光層膜厚 (nm)	発光材料ポート温度 (°C)	印加電圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	輝度 (cd/m ²)	発光色 λ_{max} (nm)	最高輝度 (cd/m ²)
応用例 10	化合物 9	TPDA (70)	60	258	7.5	9.8	130	Blue 475	1100
応用例 11	化合物 12	TPDA (60)	60	265~270	10	196	850	Blue 474	1500
応用例 12	化合物 13	TPDA (60)	70	260~270	12.5	140	570	Blue 472	1500
応用例 13	化合物 37	TPDA (60)	60	345	14	55	1900	Blue 472	3000
応用例 14	化合物 11	TPDA (70)	70	313	7.5	18	13	Greenish Blue 482	500
応用例 15	化合物 26	TPDA (60)	60	250	10	37.8	760	Blue 477	1500
応用例 16	化合物 41	TPDA (70)	60	240	7	11.5	170	Greenish Blue 482	1500
応用例 17	化合物 40	TPDA (60)	60	330	15	35	400	Greenish Blue 485	1000
応用例 18	化合物 15	TPDA (60)	60	330	12.5	310	940	Greenish Blue 482	1000
応用例 19	化合物 42	TPDA (60)	60	297	15	38	270	Greenish Blue 484	1000

〔発明の効果〕

本発明の芳香族ジメチリジン化合物は、新規な化合物であり、青紫～緑にわたる領域で輝度 1000 cd/m^2 以上の高輝度のEL発光が得られると同時に、実用レベルの輝度 ($50 \sim 200\text{ cd/m}^2$) において効率的なEL発光が得られる。

したがって、本発明の芳香族ジメチリジン化合物は、EL素子の発光材料を始め、各種発光材料として、有効な利用が期待される。

特許出願人 出光興産株式会社

代理人 弁理士 大谷 保

